



TITLE:

# クラスターイオンビームと固体表面の相互作用

AUTHOR(S):

龍頭, 啓充

---

CITATION:

龍頭, 啓充. クラスターイオンビームと固体表面の相互作用. 京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステム研究成果報告書 2015, 2014: 99-100

ISSUE DATE:

2015-03

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/197607>

RIGHT:

## クラスターイオンビームと固体表面の相互作用

### Interaction between cluster ion beams and solid surfaces

京都大学大学院 工学研究科 附属光電子理工学教育研究センター 龍頭啓充

## 背景と目的

数個から数万個の原子や分子が結合した塊状集団であるクラスターは、取りうる構成原子数（クラスターサイズ）が幅広くその物理的・化学的性質はクラスターサイズに依存し、バルクとは異なる性質を示す [1]。ファンデルワールスクラスター、水素結合クラスター、金属クラスターなどの分子間力の異なる様々なクラスターに対してこれまで構造解析が行われてきており、ノズルビーム法により生成された van der Waals 結合性の Ar クラスターや [2]、水素結合性の  $\text{H}_2\text{O}$  クラスターの構造解析が報告されている [3]。特に  $\text{H}_2\text{O}$  クラスターは分子サイズ 21 の正十二面体のかご状構造が安定であると考えられており [4]、かご状構造内部に様々なゲスト分子を取り込んだハイドレートクラスターを形成すると言われている。ハイドレートクラスターは、新エネルギー分野において知られるメタンハイドレートの構成単位であり、新規物性の発現の見られる金属内包フラーレンと同様に、様々な応用が期待できる。このため、我々は電子線回折を備えたノズルビーム型クラスター装置を作製し、実験的な構造の評価を目指している。本報告では、予備実験として得られた  $\text{CO}_2$  クラスターの電子線回折像を、シミュレーションにより求めた回折パターンと比較し評価した。

## 検討内容

$\text{CO}_2$  は自由噴流において比較的凝集しやすい気体として、分子ビームやクラスタービームの研究においてよく使用されている。 $\text{CO}_2$  クラスターの構造を電子線回折像から同定するため、Materials Studio 7.0 のReflex を用いて回折パターンを計算し、実験結果と比較した。電子線のエネルギーを 10 keV、波長  $0.1220474 \text{ \AA}$  とし、回折範囲を  $0.0100^\circ$  刻みで  $0.000^\circ \leq 2\theta \leq 6.997^\circ$  ( $0 \text{ \AA}^{-1} \leq 1/d_{hkl} \leq 1.000 \text{ \AA}^{-1}$  に相当) とした。なお、計算した回折パターンのブロードニングは、ローレンシアン分布を仮定してパラメータを調整することにより行った。

$\text{CO}_2$  クラスターの形成は、ガラスラバーノズルを用いたノズルビーム法により行った。ノズル喉径は  $0.4 \text{ mm}$  とし、生成直後のクラスタービームは穴径  $0.5 \text{ mm}$  のスキマーにより切り出し、差動排気チャンバーを経て解析チャンバーへと導入した。電離真空計により計測したクラスタービーム強度は、 $1\text{--}4 \times 10^{21} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}$  であった。

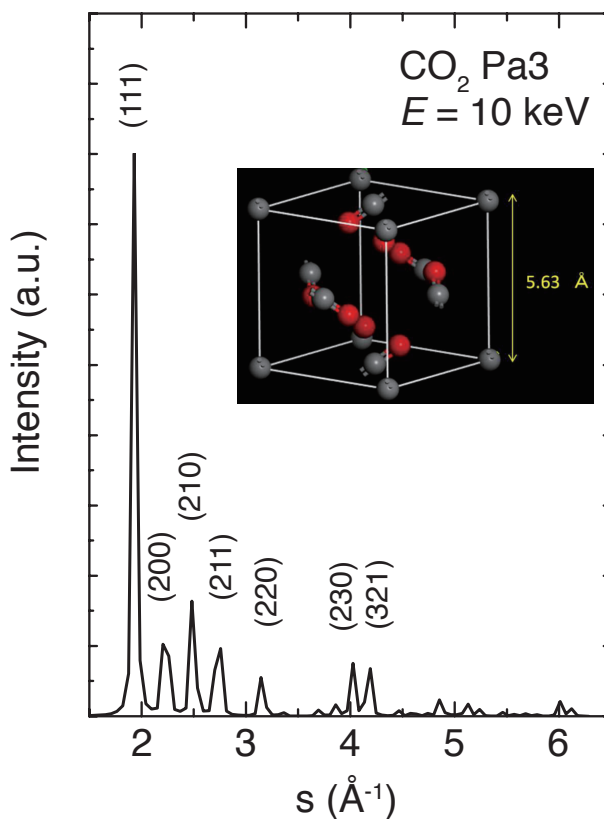


図1  $\text{Pa3}$  構造  $\text{CO}_2$  の電子線回折シミュレーション。

## 結果と考察

図 1 に固体  $\text{CO}_2$  (Pa3 構造) の電子線回折シミュレーションを示す。  $\text{CO}_2$  は低温では昇華性の固体であるドライアイスとして知られ, 立方晶系の Pa3 構造をとり, 電子線 10 keV では  $s$  値約  $1.9\text{\AA}^{-1}$  において (111) から最も強い回折線を示すことがわかる。

図 2 に観測した  $\text{CO}_2$  クラスターの電子線回折像を示す。 同心円状に回折線が複数現れていることがわかる。 各導入圧力条件にて生成した  $\text{CO}_2$  クラスターの電子線回折パターンを図 3 に示す。 回折像から円環平均をとりバックグラウンド補正を行い回折パターンに変換した。 いずれの圧力においても  $2.2\text{\AA}^{-1}$  付近に最強線が見られる事がわかる。 シミュレーション結果と比較すると, 各ピーク  $s$  値の比  $s_{\text{exp}}/s_{\text{sim}}$  はおよそ 1.13 で一定であった。 今回の実験ではカメラ長の校正は行っていないため,  $s$  の差異はカメラ長の誤差および, クラスターの格子定数変化によるものの両者を含んでいる。 一方で,  $s_{\text{exp}}/s_{\text{sim}}$  は一定であることから, 今回生成した  $\text{CO}_2$  クラスターはバルク  $\text{CO}_2$  の Pa3 構造であると考えられる。 また, 電子線回折ピーク半値幅よりクラスターサイズを概算したところ, 導入ガス圧 5 atm, ノズル径 0.4 mm, スキマー径 0.5 mm において, およそ  $2 \times 10^4$  であった。 このことから, 得られた  $\text{CO}_2$  クラスターがバルクと同様の構造をとっていたことが裏付けられる。

## 参考文献

- [1] J. Jortner, Z. Phys. D: Atom. Mol. Cl. 24 (1992) 247.
- [2] J. Farges, B. Raoult, G. Torchet, J. Chem. Phys. 59 (1973) 3454.
- [3] S. Lin, Rev. Sci. Instrum. 44 (1973) 516.
- [4] S. Wei, Z. Shi and A. W. Castleman Jr., J. Chem. Phys. 94 (1991) 3268.

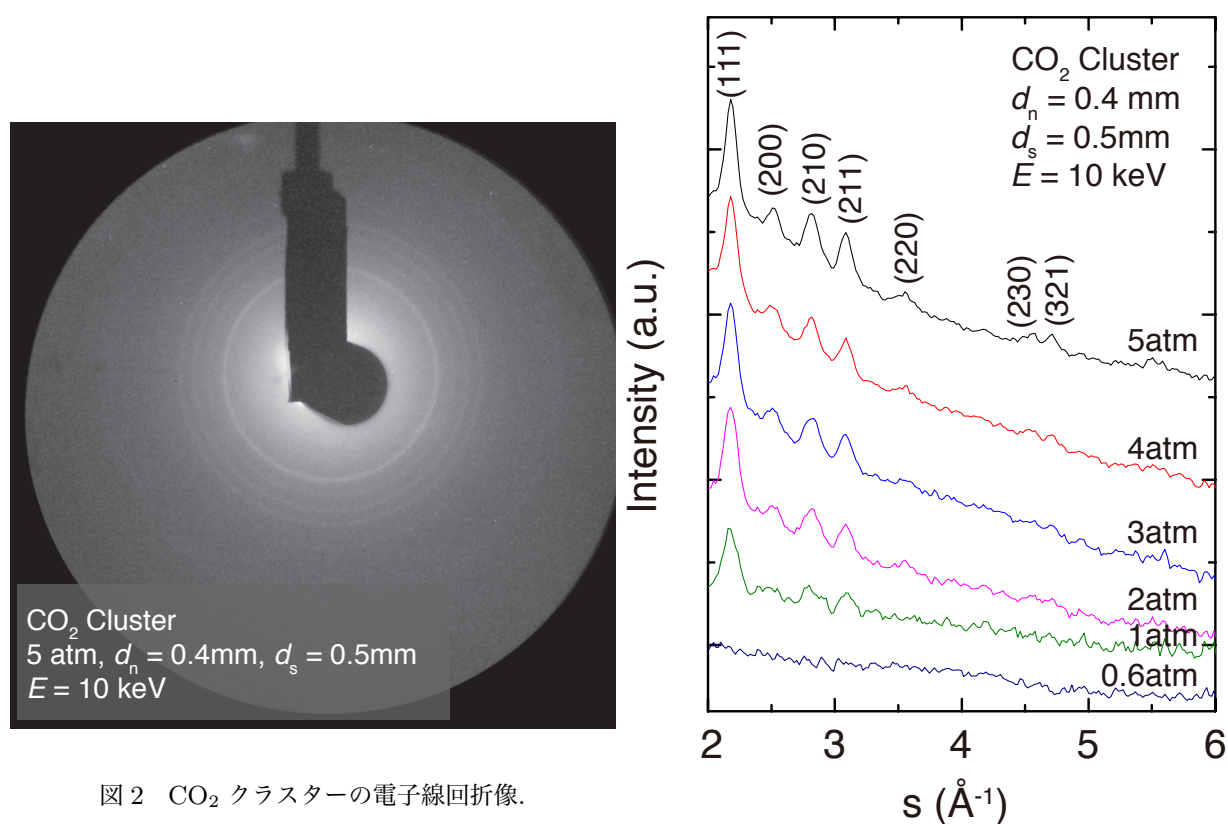


図 2  $\text{CO}_2$  クラスターの電子線回折像。

図 3 測定した  $\text{CO}_2$  クラスターの電子線回折パターン。